

Searching PAJ

<http://www.19.ipdl.ncipi.go.jp/PA1/result/detail/main/wAAAzoaiFKDA412030746P3.htm>

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-030746

(43)Date of publication of application : 28.01.2000

(51)Int.Cl.

H01M 10/40

H01M 2/22

H01M 10/04

BEST AVAILABLE COPY

(21)Application number : 10-200608

(71)Applicant : TOYOTA MOTOR CORP

(22)Date of filing : 15.07.1998

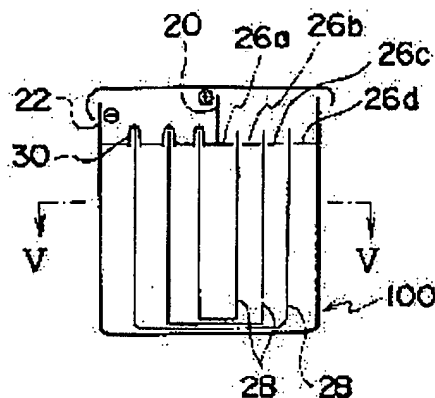
(72)Inventor : KAWAMOTO KOJI

(54) BIPOLAR TYPE LITHIUM ION SECONDARY BATTERY

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a bipolar type lithium ion secondary battery with high capacity, compact size, and high insulation.

SOLUTION: A positive active material is formed on a positive current collecting foil and a negative active material is formed on a negative current collecting foil. The positive active material and the negative active material are faced through a separator, then they are spirally wound to form a battery constitution body 26. The same other battery constitution body 26 is wound on the outside of the battery constitution body 26 through an insulating container 28, and the specified numbers of battery constitution bodies 26a-26d are wound in the same way, then electrically connected in series from the inside battery constitution body 26 to the outside other battery constitution body 26 to obtain this bipolar type lithium ion secondary battery.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 03.10.2001

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3419311

[Date of registration] 18.04.2003

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

26/
35

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-30746

(P2000-30746A)

(43) 公開日 平成12年1月28日 (2000.1.28)

(51) Int.Cl.	識別記号	F I	テマコード (参考)
H 0 1 M 10/40		H 0 1 M 10/40	Z 5 H 0 2 2
2/22		2/22	B 5 H 0 2 8
10/04		10/04	E 5 H 0 2 9
			W

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願平10-200608

(22) 出願日 平成10年7月15日 (1998.7.15)

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 川本 浩二

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

(74) 代理人 100075258

弁理士 吉田 研二 (外2名)

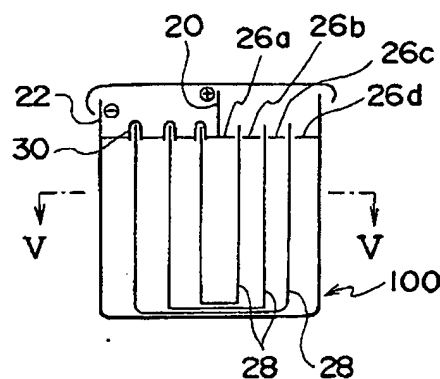
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 バイポーラ型リチウムイオン2次電池

(57) 【要約】

【課題】 容量が大きくかつコンパクト化が可能であり、絶縁性の向上したバイポーラ型リチウムイオン2次電池を提供する。

【解決手段】 正極集電箔上に正極活物質を形成し、負極集電箔上に負極活物質を形成する。これらの正極活物質及び負極活物質はセパレータを介して対向配置され、これを捲回して電池構成体26とする。このような電池構成体26の外側に、絶縁容器28を介して更に同じ電池構成体26を捲回していき、所定個数の電池構成体26a～dを捲回した後内側の電池構成体26から外側の電池構成体26に向かって電気的に直列に接続し、バイポーラ型リチウムイオン2次電池を得る。



BEST AVAILABLE COPY

27/38

(2)

特開2000-30746

1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 正極と負極との間にセパレータを挟んだ状態で捲回される電池構成体が、絶縁体を介して複数個同心円状に捲回され、内側の電池構成体から外側の電池構成体に向かって、順次電気的に直列に接続されていることを特徴とするバイポーラ型リチウムイオン2次電池。

【請求項2】 正極と負極との間にセパレータを挟んだ状態で捲回される電池構成体が複数個同心円状に捲回され、内側の電池構成体から外側の電池構成体に向かって、順次電気的に直列に接続されており、各接続部では、内側の電池構成体の正極または負極の集電箔と外側の電池構成体の負極または正極の集電箔とが接続されていることを特徴とするバイポーラ型リチウムイオン2次電池。

【請求項3】 請求項1または請求項2記載のバイポーラ型リチウムイオン2次電池において、前記内側の電池構成体と外側の電池構成体との接続部を構成する集電箔が、内側の電池構成体の外周全体を包む構造となっていることを特徴とするバイポーラ型リチウムイオン2次電池。

【請求項4】 請求項1または請求項2記載のバイポーラ型リチウムイオン2次電池において、前記各電池構成体の正極及び負極は、集電箔の片面にのみ活物質が積層されており、各電池構成体の積層端面は正極及び負極の集電箔であり、前記内側の電池構成体と外側の電池構成体との接続部は、内側の電池構成体の正極または負極の集電箔と外側の電池構成体の負極または正極の集電箔とが電気的に接触していることを特徴とするバイポーラ型リチウムイオン2次電池。

【請求項5】 請求項1から請求項4のいずれか一項記載のバイポーラ型リチウムイオン2次電池において、前記内側の電池構成体と外側の電池構成体の電気容量は同じで、内部抵抗を内側の電池構成体ほど高くしたことを特徴とするバイポーラ型リチウムイオン2次電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、バイポーラ型リチウムイオン2次電池の構造の改良に関する。

【0002】

【従来の技術】従来より、リチウムイオン2次電池を複数直列に接続したものを1個の電池としたバイポーラ型リチウムイオン2次電池が使用されている。このようなバイポーラ型リチウムイオン2次電池は、正極と負極との間に電解質を含みリチウムイオン導電性のあるセパレータを挟んで電池構成体を形成し、これを電極方向に積層し、各電池構成体を直列接続することにより形成していた。このようなバイポーラ型リチウムイオン2次電池の例が特開昭59-90359号公報に開示されている。

2

【0003】図15には、本従来例のバイポーラ型リチウムイオン2次電池の断面図が示される。図15において、電池ケース100の中には、正極集電箔10上に正極活物質12を塗布して形成された正極と、負極集電箔14上に負極活物質16を塗布して形成された負極との間に、リチウムイオン導電性を有するセパレータ18を挟んで電池構成体とし、この電池構成体が複数電極方向に積層された構造を有するバイポーラ型リチウムイオン2次電池が収容されている。このようにして構成されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池の両方の積層端面は、それぞれ正極集電箔10と負極集電箔14になっており、これらに正極端子リード20及び負極端子リード22が接続されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記従来のバイポーラ型リチウムイオン2次電池においては、各電池構成体を、その積層方向には薄くすることができるが、これと同時に大きな容量を得るためには、正極及び負極の面積を大きくする必要がある。このため、正極、負極の面積方向にコンパクト化するのが困難であるという問題があった。

【0005】また、各電池構成体の間隔が、数10～100μmと薄いので、電池構成体の周囲の絶縁処理が難しいという問題もあった。

【0006】本発明は、上記従来の課題に鑑みなされたものであり、その目的は、容量が大きいかつコンパクト化が可能であり、絶縁性の向上したバイポーラ型リチウムイオン2次電池を提供することにある。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、本発明は、バイポーラ型リチウムイオン2次電池であって、正極と負極との間にセパレータを挟んだ状態で捲回される電池構成体が、絶縁体を介して複数個同心円状に捲回され、内側の電池構成体から外側の電池構成体に向かって、順次電気的に直列に接続されていることを特徴とする。

【0008】また、バイポーラ型リチウムイオン2次電池であって、正極と負極との間にセパレータを挟んだ状態で捲回される電池構成体が複数個同心円状に捲回され、内側の電池構成体から外側の電池構成体に向かって、順次電気的に直列に接続されており、各接続部では、内側の電池構成体の正極または負極の集電箔と外側の電池構成体の負極または正極の集電箔とが接続されていることを特徴とする。

【0009】また、上記バイポーラ型リチウムイオン2次電池において、内側の電池構成体と外側の電池構成体との接続部を構成する集電箔が、内側の電池構成体の外周全体を包む構造となっていることを特徴とする。

【0010】また、上記バイポーラ型リチウムイオン2次電池において、各電池構成体の正極及び負極は、集電

BEST AVAILABLE COPY

28/35

(3)

特開2000-30746

3

4

箔の片面にのみ活物質が積層されており、各電池構成体の積層端面は正極及び負極の集電箔であり、内側の電池構成体と外側の電池構成体との接続部は、内側の電池構成体の正極または負極の集電箔と外側の電池構成体の負極または正極の集電箔とが電気的に接触していることを特徴とする。

【0011】また、上記バイポーラ型リチウムイオン2次電池において、内側の電池構成体と外側の電池構成体の電気容量は同じで、内部抵抗を内側の電池構成体ほど高くしたことを特徴とする。

【0012】

【発明の実施の形態】以下、本発明の実施の形態（以下実施形態という）を、図面に従って説明する。

【0013】実施形態1. 図1及び図2には、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成する電池構成体の例が示される。図1において、正極集電箔10の上に正極活物質12を塗布して構成された正極と、負極集電箔14の上に負極活物質16を塗布して構成された負極との間にリチウムイオン導電性を有するセパレータ18を挟んで電池構成体26を構成する。この電池構成体26は、図1に示されるように捲回される。この場合、負極集電箔14の外側には、絶縁フィルム24が積層されている。これにより、上記電池構成体26を捲回したときに、正極集電箔10と負極集電箔14とが短絡することを防止している。このようにして捲回した電池構成体26の断面図が図2に示される。図2に示されるように、電池構成体26は、その最内部に正極集電箔10が、また最外部に負極集電箔14が露出している。

【0014】なお、図1に示された例では、正極集電箔10及び負極集電箔14には、その片側に正極活物質12及び負極活物質16が塗布されているが、これを図3に示されるように、それぞれの集電箔10、14の両側に各々正極活物質12及び負極活物質16を塗布する構成としてもよい。この場合には、積層された各層のうち、正極集電箔10と負極集電箔14との内側に位置する正極活物質12と負極活物質16との間にセパレータ18aが挟み込まれている。また、負極集電箔14の外側の負極活物質16の更に外側には、やはり同じセパレータ18bが配置されている。これを、矢印Aの方向に捲回していくと、上述した内側の正極活物質12及び負極活物質16がセパレータ18aを介して対向配置されるとともに、外側の正極活物質12及び負極活物質16も、負極活物質16の外側に配置されたセパレータ18bを介して対向配置されることになる。この場合、負極集電箔14の負極活物質16が塗布されていない部分の長さを十分に確保しておけば、図3の矢印A方向に捲回した場合、最内部に正極集電箔10が露出し、最外部に負極集電箔14が露出した構造の電池構成体26を得ることができる。

【0015】図2に示された電池構成体26は、絶縁体で覆い、更にこの外周に、図1に示された電池構成体26を同心円状に捲回していく。このように、複数の電池構成体26が、絶縁体を介して同心円状に捲回され、内側の電池構成体から外側の電池構成体に向かって、順次電氣的に直列に接続され、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池が構成される。このように、電池構成体26を捲回することにより、捲回しないで積層する場合に比べコンパクト化でき、容量が大きくかつコンパクト化されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池とすることができる。

【0016】以上のようなバイポーラ型リチウムイオン2次電池の断面図が図4に示される。図4において、最内部の電池構成体26aから最外部の電池構成体26dまでは、絶縁容器28を介して同心円状に捲回されている。これらが電池ケース100内に収められ、内側の電池構成体26aから順次電池構成体26b、26c、26dの順番に直列接続用リード線30によって直列接続されていく。前述したように、電池構成体26の最内部には、正極集電箔10が露出しているので、これに正極端子リード20を接続し、電池構成体26の最外部には、負極集電箔14が露出しているのでこれに負極端子リード22を接続する。

【0017】図5には、図4に示された本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池のV-V断面図が示される。ただし、電池ケース100は省略してある。本実施形態においては、4つの電池構成体26a、26b、26c、26dが、それぞれ内側の電池構成体26aから順次その外側に同心円状に捲回され、内側の電池構成体26aから外側の電池構成体26dに向かって直列に接続されている。このバイポーラ型リチウムイオン2次電池を使用する場合には、正極端子リード20と負極端子リード22とを介して充放電を行わせる。

【0018】なお、本実施形態では、最内部に正極が、最外部に負極が形成されているが、電池構成体26の積層順または捲回方向を逆にして、正極と負極との配置を逆にすることもできる。

【0019】以下に、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の具体例を実施例1として説明する。

【0020】実施例1. 正極活物質12として LiMn_2O_4 を使用し、これを正極集電箔10としてのアルミニウム箔上に塗布して正極を構成した。また、負極活物質16として黒鉛を使用し、これを負極集電箔14としての銅箔上に塗布して負極を構成した。また、セパレータ18として不織布を使用した。これらを図1に示されるように積層し、これを捲回して電池構成体26とした。このように構成した電池構成体26を、絶縁容器28としてのポリプロピレン（PP）製の袋に入れ、さらにその外周に以上に述べたと同様の電池構成体26を捲回し

BEST AVAILABLE COPY

29/25

(4)

特開2000-30746

5

て、この全体もポリプロピレン製の袋に入れた。このように、ポリプロピレン製の袋に入れた電池構成体の外周にさらに電池構成体を捲回していき、図4に示されるように絶縁容器28としてのポリプロピレン製の袋を介して4個の電池構成体26a、26b、26c、26dを同心円状に捲回した。

【0021】次に、EC:DEC=1:1の液体にLiPF₆を1mol/l溶解させた溶液とPVDF-HFPとを、その重量比が7:1となるように混合したものを電解液として準備した。この電解液を、上述したポリプロピレン製の袋に入れられた各電池構成体26、26b、26c、26dに含浸させ、120℃に加熱した後室温に戻し、電解液を正、負極及びセパレータ18中でゲル化させた。その後ポリプロピレン製の袋の開口部を熱プレスにより閉じ、各電池構成体26、26b、26c、26dを完全に封止し分離した。その後、内側の電池構成体26aから外側の電池構成体26dに向かって、直列接続用リード線30によって順次電気的に直列に接続した。最後にこれらを電池ケース100内に封入し、最内部の正極集電箔10と最外部の負極集電箔14とに、それぞれ正極端子リード20及び負極端子リード22を接続し、本実施例に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池を得た。

【0022】このようにして得たバイポーラ型リチウムイオン2次電池を評価したところ、平均電圧として15.8Vを得ることができた。また、充電状態で10日間放置した後も、その電圧は15.6Vを保持していた。比較例として、図1に示された電池構成体26を捲回せずに、積層した状態で、その周囲を絶縁したバイポーラ型リチウムイオン2次電池を同様に評価した。その結果、当初15.8Vの電圧が得られたが、10日間放置した後は、10.8Vまで低下した。これは、各電池構成体26の厚さが数10~100μm程度と薄いので、周囲の絶縁処理が困難であることから、漏れ電流が大きいと考えられる。

【0023】実施形態2。図6には、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の構成の断面図が示される。また、図7には、図6に示されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成する電池構成体26の断面図が示される。

【0024】図7において、正極集電箔10の両面には正極活物質12が塗布され、正極を構成している。また、負極集電箔14の両面には負極活物質16が塗布され、負極を構成している。これらの正極活物質12と負極活物質16のうち、内側に配置されたもの同士がセパレータ18aを介して対向配置されている。また、正極活物質12のうち正極集電箔10の負極と反対側（外側）に形成されたものには、さらにセパレータ18bが形成されている。これにより、電池構成体26が捲回されたときに、外側に配置された正極活物質12と負極活

6

物質16同士がセパレータ18bを介して対向配置されることになる。このような電池構成体26は、一方の正極集電箔10と他方の負極集電箔14とが接続部32で接続され、複数の電池構成体26が直列に接続されている。このように、正極集電箔10と他方の負極集電箔14とを直接つなぐことにより、接触抵抗を小さくすることができる。

【0025】以上のようにして構成された電池構成体を、図7に示された矢印Aの方向に捲回すると、図6に示されるような構造のバイポーラ型リチウムイオン2次電池を得ることができる。図6においては、正極と負極との間にセパレータ18a、bを挟んだ状態で捲回された電池構成体26が複数の同心円状に捲回された構造となっている。また、図7に示されるように、電池構成体26は接続部32により直列に接続されているので、図6においても、内側の電池構成体26から外側の電池構成体26に向かって、順次電気的に直列に接続された構造となっている。

【0026】この際に、一方の電池構成体26と他方の電池構成体26とを接続する正極集電箔10及び負極集電箔14の捲回方向の長さは、それぞれ捲回していく場合に集電箔10、14のみで内側の電池構成体26の外周を一周以上捲回できる長さとしておく。これにより内側の電池構成体26の外周全体が集電箔により包まれる構造となり、内側の電池構成体26と外側の電池構成体26の正極及び負極が短絡することを防止できる。この際に、2つの電池構成体を接続する集電箔10、14の接続部32における捲回方向と垂直方向の幅は、電極が構成されている部分よりも大きくするのが望ましい。これは、電池構成体26を捲回した後円筒形状となったバイポーラ型リチウムイオン2次電池の上下端から電解質が隣の電池構成体に移動し電解質短絡が発生することを防止するためである。

【0027】以上のようにして構成した図6に示されるバイポーラ型リチウムイオン2次電池は、その最内部に正極集電箔10が、最外部に負極集電箔14が露出しているため、それぞれに正極端子リード20及び負極端子リード22を接続する。なお、本実施形態においても、最内部と最外部の正極と負極とを逆に構成することも可能である。また、図6では、電池ケース100は省略されている。

【0028】図8(a)、(b)には、本実施形態に係る電池構成体26の変形例が示される。本変形例において特徴的な点は、一方の電池構成体26の正極集電箔10と他方の電池構成体26の負極集電箔14とを接続するために、ステンレス鋼等の接続用集電箔34を使用したことにある。この接続用集電箔34は、電池構成体26の捲回方向に対して90°方向の幅が電極部分よりも大きくになっている。これにより、電池構成体26を捲回した場合に、円筒型のバイポーラ型リチウムイオン2次

50

30/35

BEST AVAILABLE COPY

(5)

特開2000-30746

7

電池の上下の端から電解質が漏れ出て短絡することを防止することができる。

【0029】本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池においても、実施形態1と同様に正極集電箔10としてアルミニウム箔を使用し、負極集電箔14として銅箔を使用した。また、正極活物質12としては LiMn_2O_4 を使用し、負極活物質16として黒鉛を使用した。これらの活物質は結着剤PVDFと混合したものを上述の集電箔10、14上に塗布して形成したものである。また、セパレータ18としては不織布を使用した。これらの正極、負極及びセパレータ18には、実施形態1と同様の電解液を含浸させ、120℃に加熱した後室温に戻しゲル化させている。

【0030】実施形態3、図9には、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の構成の断面図が示される。また、図10(a)、(b)には、図9に示されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成する電池構成体26の断面図及び平面図が示される。

【0031】図10(a)に示されるように、本実施形態における電池構成体26は、正極集電箔10の片面のみに正極活物質12が形成されており、負極集電箔14の片面のみに負極活物質16が形成されている。これらの正極活物質12及び負極活物質16は、セパレータ18を介して対向配置されている。また、一方の電池構成体26の正極集電箔10と他方の電池構成体26の負極集電箔14とは、接続部32で接続されており、電池構成体26が直列接続されている。

【0032】本実施形態において特徴的な点は、各電池構成体26が、接続部32を除いて、ポリプロピレンフィルム等から成る絶縁フィルム36で覆われていることである。このような構成により、実施形態2のように、内側の電池構成体26の外周に外側の電池構成体26を巻き付ける際に、内側の電池構成体26の外周の一周分以上にわたって集電箔を捲回しなくても、内側の電池構成体26と外側の電池構成体26とが短絡することがなくなる。このため、図9に示されるように、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池においては、接続部32において正極集電箔10と負極集電箔14とを接続する際に、使用する集電箔の長さを短くすることができ、そのぶん体積当たりの電気容量を増加させることができる。

【0033】なお、図9には、3つの電池構成体が、それぞれ内側のものの外周に外側のものが巻き付けられ、それぞれ内側から外側に向かって直列に接続された例が示されている。この電池構成体の数は、3つに限られるものではなく、4つあるいはそれ以上のものを順次捲回していくことができる。

【0034】以下に、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の具体例を実施例2として説明する。

8

【0035】実施例2、正極集電箔10としてアルミニウム箔を使用し、負極集電箔14として銅箔を使用した。また、正極活物質12として LiMn_2O_4 を、負極活物質16として黒鉛を使用した。これらの活物質を結着剤PVDFと混合してペーストとし、各集電箔の片面のみに塗布した。また、セパレータ18としては不織布を使用し、実施形態1及び2と同様に、 $\text{EC}:\text{DEC}=1:1$ の液体に LiPF_6 を 1mol/l 溶かした溶液とPVDF-HFPとの重量比が7:1となるように混合した電解液を含浸させた。これを120℃に加熱した後室温に戻し、含浸させた電解液をゲル化させた。なおこの電解液は、セパレータ18の他、上述した正極及び負極にも含浸されている。

【0036】このように構成した電池構成体26を、ポリプロピレンフィルムで正極集電箔10及び負極集電箔14の端部を除いて覆い、熱圧着することにより封止した。この状態で電池特性を評価し、短絡、容量のばらつき等をチェックした。

【0037】次に、このように構成した各電池構成体26の正極集電箔10と負極集電箔14とをスポット溶接により接続し、図10(a)、(b)に示される捲回方向Aに捲回し本実施例に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池を得た。この際、最内部に露出した正極集電箔10には正極端子リード20を取り付け、最外部に露出した負極集電箔14には、負極端子リード22を取り付けた。なおこの負極端子リードは、最外部の負極集電箔14を、電池構成体26を収納する電池ケース100（図示せず）に接触させ、この電池ケース100に負極端子リード22を取り付けることとしてもよい。また、本実施例においても、最内部を負極、最外部を正極とすることも可能である。

【0038】以上の方法により、4つの電池構成体26からなるバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成し、その電気特性を評価した。

【0039】本実施例に係る電池構成体26は、それぞれ正極集電箔10と負極集電箔14の片面のみに正極活物質12及び負極活物質16が形成されているので、これを捲回する前からリチウムイオン2次電池として完成しているため、個々の電池構成体の容量チェック及び短絡チェックが可能である。本実施例に使用した電池構成体26は、容量のばらつきが最大20%あるが、上述したように、個々の電池構成体26の容量をあらかじめ測定することができるので、容量ばらつきの小さい電池構成体のみでバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成することが可能となる。これにより、サイクル特性を向上させることができる。

【0040】容量ばらつきが5%以内の電池構成体26のみを4つ直列接続し、図10(a)、(b)に示される捲回方向Aに捲回し、バイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成し、12V-17Vの間で、1Cの一定電

50

BEST AVAILABLE COPY

31/35

(6)

特開2000-30746

9

10

流で充電させたところ、100サイクル後の容量維持率が87%と良好な値を得ることができた。

【0041】実施形態4. 図11には、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の構成の断面図が示される。また、図12(a)、(b)には、図11に示されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成する電池構成体26の断面図及び平面図が示される。

【0042】図12(a)において、正極集電箔10の片面のみに、正極活物質12を形成して正極を構成した。また、負極集電箔14の片面のみに負極活物質16を形成し、負極を構成した。これらの正極及び負極は、セパレータ18を介してそれぞれの活物質12、16が対向するように配置され、電池構成体26を構成している。本実施形態に係る電池構成体26は、正極活物質12と負極活物質16とセパレータ18の両端部に絶縁部材38が設けられており、これにより電池構成体26の正極集電箔10と負極集電箔14とを密着させている。これにより正極活物質12と負極活物質16とをセパレータ18とからなる内容物を密閉し、電解質の漏れを防止できる。従って、電解質の短絡による電圧低下を防止することができ

【0043】図12(b)には、活物質12、16が塗布された集電箔10、14と周囲を絶縁部材38で囲まれたセパレータ18とが示される。これらにより電池構成体26を形成する場合には、絶縁部材38で囲まれた部分に活物質12、16が収容され、セパレータ18と接するようにそれぞれ正極と負極とを絶縁部材38にはめ合わせる。これにより、図12(a)に示されるような電池構成体26を得ることができる。

【0044】このような電池構成体26は、図12(a)に示されるように、集電箔、活物質、セパレータが積層されて構成されており、その積層構造の上下の積層端面は正極集電箔10及び負極集電箔14となっている。したがって、これを図12(a)に示される矢印Aの方向に捲回し、最内部に正極集電箔が、最外部に負極集電箔が来るようにし、さらに、この最外周の負極集電箔に、次の電池構成体26の最内周の正極集電箔10が電気的に接触するように外側に捲回することができる。以後同様にして所定個数の電池構成体26を順次外側に捲回していく。これにより、図11に示されるように、内側から外側に向かって電池構成体26が直列に接続されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池を得ることができる。このようにして組み立てたバイポーラ型リチウムイオン2次電池は、その最内部の正極集電箔に正極端子リード20を接続し、最外部の負極集電箔に負極端子リード22を接続する。本実施形態においても、最内部を負極、最外部を正極とすることも可能である。

【0045】なお、本実施形態に係る電池構成体26は、捲回せずに従来同様積層してもバイポーラ型リチウムイオン2次電池を得ることができる。

【0046】以下に、本実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の具体例を実施例3として説明する。

【0047】実施例3. 正極集電箔10としてアルミニウム箔を使用し、この片面のみに、その周囲に余白を作って活物質を印刷乾燥し正極とした。正極活物質12としては、 LiMn_2O_4 を使用し、これに導電剤として天然黒鉛を混合した。また、ゲル電解質として $\text{EC}:\text{DEC}=1:1$ の液体に LiPF_6 を 1mol/l 溶解した溶液と PVDF-HFP とを $3:1$ としたものを使用した。また、ペースト化するための有機溶媒としてテトラヒドロフラン(THF)を使用した。これらを、その混合比として、 LiMn_2O_4 :天然黒鉛:ゲル電解質:有機溶媒 $=10:1:10:30$ で混合し、正極ペーストとし、上記正極集電箔10に塗布した。

【0048】また、負極集電箔14として銅箔を使用し、この片面のみに、その周囲に余白を作って活物質を印刷乾燥し負極とした。負極活物質としては天然黒鉛を使用し、ゲル電解質及び有機溶媒として上記正極と同じものを使用した。これらを、その混合比として天然黒鉛:ゲル電解質:有機溶媒 $=1:1:4$ で混合し、負極ペーストとし、これを上記負極集電箔14に塗布した。

【0049】また、セパレータ18としては、不織布にゲル電解質と有機溶媒とを含浸させ乾燥させたものを使用した。ゲル電解質としては $\text{EC}:\text{DEC}=1:1$ の液体に LiPF_6 を 1mol/l 溶解させた溶液と PVDF-HFP とを $5:1$ の割合で混合したものを使用し、有機溶媒としてTHFを使用した。ゲル電解質と有機溶媒との混合比は $1:2$ とした。このようにして形成したセパレータ18は、ゲル電解質が漏れないようにポリプロピレンフィルムから成る絶縁部材38により周囲を囲んだ。さらに、このセパレータ18を介して上述した正極及び負極の活物質12、14が対向するように配置し、熱プレスすることにより正極集電箔10-絶縁部材38-セパレータ18-絶縁部材38-負極集電箔14が熱圧着され、内容物を密封した。この熱プレスにより正極活物質12、セパレータ18、負極活物質16の中にあるゲル電解質も熱溶融後再ゲル化され、ゲル間での空隙がなくなり、イオン伝導性が向上される。

【0050】以上のようにして構成した電池構成体26を、その容量及び短絡の有無をチェックした後、図示しない電池ケース内で四重に捲回し、内側の電池構成体26から外側の電池構成体26に向かって電気的に直列に接続し、バイポーラ型リチウムイオン2次電池を得た。

【0051】このようにして本実施例に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池は、初期に16.4Vまで充電した状態で10日間放置しても、電圧が15.6Vまでの低下に留まった。これに対して、セパレータ18の周囲をあらかじめ絶縁部材38で覆わずに電池構成体26を捲回し、その後に電解質が露出した部分をエポキシ

32/25

BEST AVAILABLE COPY

(7)

特開2000-30746

11

12

樹脂等で絶縁したものは、10日間放置した後、16.4Vの電圧が3.8Vまで低下していた。これにより、本実施例に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池の絶縁性が極めて良好であることがわかる。

【0052】実施形態5. 以上に述べた各実施形態に係るバイポーラ型リチウムイオン2次電池においては、充放電電流が大きくなった場合、内側にある電池構成体26ほど温度が高くなる。このため、内側の電池構成体26ほどリチウムイオン伝導性が良好となり、外側の電池構成体26よりも内部抵抗が低下する。各電池構成体26は直列に接続されており、同じ大きさの電流が流れるので、内部抵抗が高い外側の電池構成体26の方が電圧が高くなる。このため、高電圧が印加されると、特に外側の電池構成体26の電解液の劣化や集電箔の溶出等により電池の劣化が起こる可能性がある。従って、個々の電池構成体26の内部抵抗が、使用時に等しくなるように調整するのが好適である。

【0053】図13には、このような各電池構成体26の内部抵抗が使用時に等しくなるバイポーラ型リチウムイオン2次電池の構成の断面図が示される。また、図14には、図13に示されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成するための電池構成体26の断面図が示される。図14において、図13に示されたバイポーラ型リチウムイオン2次電池を構成する場合には、図の矢印Aの方向に電池構成体26を捲回していくので、図の左側の電池構成体26の方が図の右側の電池構成体26よりも内側になる。このため、図の左側の電池構成体26の内部抵抗をあらかじめ高くしておけば、使用中に内側の電池構成体26の温度が高くなり、内部抵抗が低くなった場合にも、外側に来る図の右側の電池構成体26の内部抵抗と等しくすることができる。以降同様にして外側に配置される電池構成体26ほどその内部抵抗をあらかじめ低くするように構成しておく。

【0054】内部抵抗を調整する方法としては、各電極の活物質の総量と空隙率とを一定にしておき、活物質の厚さを調整し、結果として有効面積すなわちセパレータ18と対向している活物質層の面積を制御する方法がある。すなわち、厚さを厚くすれば、その分有効面積が小さくなり抵抗が高くなる。

【0055】他方、目付量すなわち単位面積当たりの活物質の重量と有効面積とを一定にし、活物質の厚さを調整し、その空隙率を変化させることによって内部抵抗を調整することができる。すなわち、プレスにより活物質の厚さを変化させ、空隙率を小さくするほど、活物質間に存在する電解質が減少し、イオン伝導性が低くなって抵抗が増加する。

【0056】このように、活物質の総量及び空隙率を一定とした状態で厚さを変えて有効面積で抵抗を調整するか、あるいは目付量及び有効面積を一定にし、活物質の空隙率を調整し内部抵抗を調整する方法が好適と考えら

れる。

【0057】以上のような内部抵抗の調整方法の具体例を、実施例4、実施例5として説明する。

【0058】実施例4. 本実施例においては、4つの電池構成体26を使用し、それぞれの内部抵抗を変化させる。4つの電池構成体26は、最も内側に捲回されるものから外側に捲回されるものの順にI、II、III、IVとし、それぞれの正極及び負極の有効面積の値を表1に示す。なお、本実施例においては、各電極の総活物質量と空隙率を一定に保ち、目付量を変化させることにより有効面積を変化させた。

【0059】

【表1】

電池構成体	目付量		有効面積
	正極	負極	
I	20.4 mg/cm ²	10.2 mg/cm ²	100cm ²
II	19.4	9.7	105.2
III	18.4	9.2	110.9
IV	17.4	8.7	117.2

なお、各活物質の空隙率は、正極、負極共に45%とした。

【0060】実施例5. 4つの電池構成体26I、II、III、IVの正極及び負極の目付量はそれぞれ20.4mg/cm²、10.2mg/cm²の一定とし、有効面積も100cm²の一定とした。このような正極及び負極の活物質を、プレスにより以下に示す厚さとし、その空隙率を調整した。

【0061】

【表2】

電池構成体	電極厚み	
	正極	負極
I	76μm	72μm
II	82	78
III	88	84
IV	97	93

電池構成体IVの場合には、空隙率が50%であり、これ以上空隙率を上げると活物質間の接触抵抗が増大し膜厚増加と共に抵抗が増加するので、この厚みが限界と考えられる。この電池構成体IVの膜厚以下では、膜厚の減少と共に空隙率が減少し、活物質間の電解質量が減少してイオン伝導度が低くなり、抵抗が高くなる。すなわち、活物質のプレス圧を高くするほど抵抗が高くなる。

【0062】以上の2つの実施例に対して、4つの電池構成体I、II、III、IVとも全て正極目付量を2

10

20

30

40

50

33/35

BEST AVAILABLE COPY

(8)

特開 2000-30746

13

14

0.4 mg/cm²、負極目付量を 10.2 mg/cm²、空隙率 45%としたものを作成して、上記 2 つの実施例と共に評価した。

【0063】以上のようにして得たバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池を、12-17 V の電圧で 1 C の定電流充放電をさせたところ、100 サイクル後の容量維持率は、実施例 4 が 90%、実施例 5 が 91%、比較例が 87%であった。このため、実施例 4 及び実施例 5 のように、内側の電池構成体ほど内部抵抗を高くすることにより、サイクル特性を向上させることができた。

【0064】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、電池構成体を捲回してバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池としているので、コンパクトで容量の大きな電池を得ることができる。

【0065】また、内側の電池構成体と外側の電池構成体との電氣的接続を集電体同士を直接つなぐことにより行うので、接触抵抗を小さくすることができる。

【0066】また、内側の電池構成体の外周を一周以上集電箔を捲回するので、電解質短絡を防止でき、絶縁性を向上できるとともに、集電箔のみで短絡を防止するので、セパレータあるいは絶縁フィルムを使用する必要がなく、その分コンパクト化を図ることができる。

【0067】また、内側の電池構成体の最外周の集電箔と外側の電池構成体の最内周の集電箔とを直接接触させて電氣的に接続するので、接触面積が大きくなり、内部抵抗を低下させることができる。

【0068】また、内側に位置する電池構成体ほど内部抵抗を高くするので、使用時にはすべての電池構成体の内部抵抗がほぼ等しくなり、各電池構成体にかかる電圧をほぼ等しくできるので、電池の劣化を抑制することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】 本発明に係るバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の実施形態 1 に使用される電池構成体の断面図である。

【図 2】 図 1 に示された電池構成体を捲回した場合の説明図である。

10

20

30

* 【図 3】 実施形態 1 に使用される電池構成体の変形例を示す断面図である。

【図 4】 実施形態 1 に係るバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の構成の断面図である。

【図 5】 図 4 に示されたバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の V-V 断面図である。

【図 6】 本発明に係るバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の実施形態 2 の断面図である。

【図 7】 図 6 に示されたバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池を構成する電池構成体の断面図である。

【図 8】 図 6 に示されたバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池を構成する電池構成体の変形例を示す図である。

【図 9】 本発明に係るバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の実施形態 3 の断面図である。

【図 10】 図 9 に示されたバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池を構成する電池構成体の断面図及び平面図である。

【図 11】 本発明に係るバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の実施形態 4 の断面図である。

【図 12】 図 11 に示されたバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池を構成する電池構成体の断面図及び平面図である。

【図 13】 本発明に係るバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の実施形態 4 の断面図である。

【図 14】 図 13 に示されたバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池を構成する電池構成体の断面図である。

【図 15】 従来におけるバイポーラ型リチウムイオン 2 次電池の断面図である。

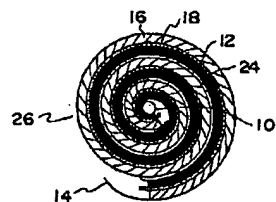
【符号の説明】

10 正極集電箔、12 正極活物質、14 負極集電箔、16 負極活物質、18 セパレータ、20 正極端子リード、22 負極端子リード、24 絶縁フィルム、26 電池構成体、28 絶縁容器、30 直列接続用リード線、32 接続部、34 接続用集電箔、36 絶縁フィルム、38 絶縁部材、100 電池ケース。

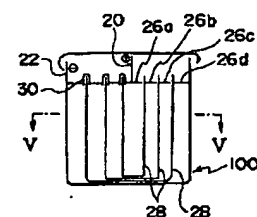
【図 1】



【図 2】



【図 4】



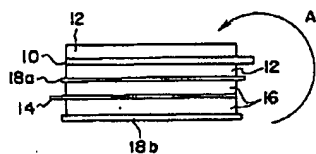
34/35

BEST AVAILABLE COPY

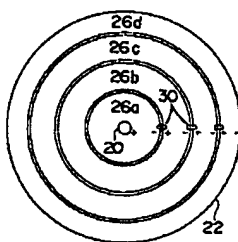
(9)

特開2000-30748

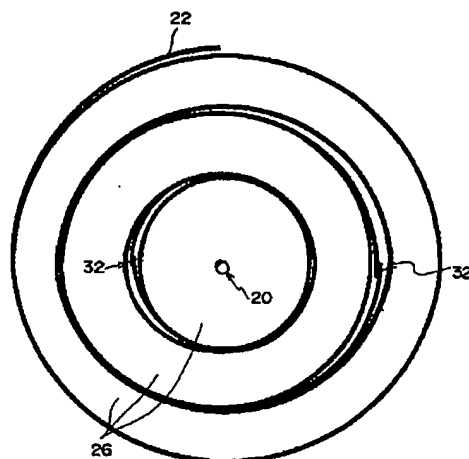
【図3】



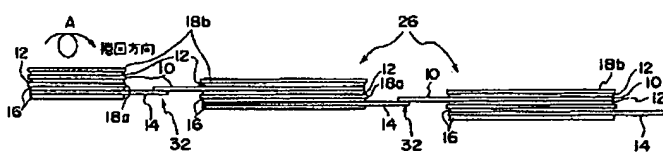
【図5】



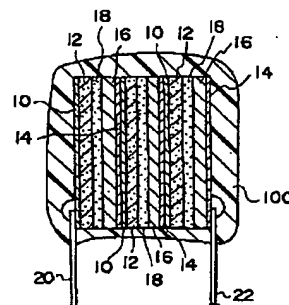
【図6】



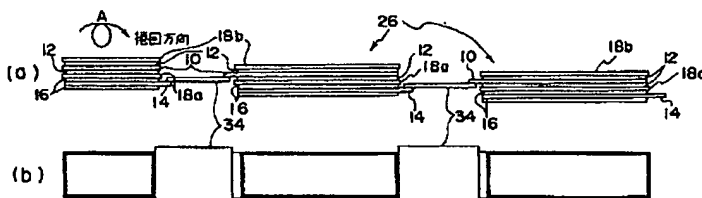
【図7】



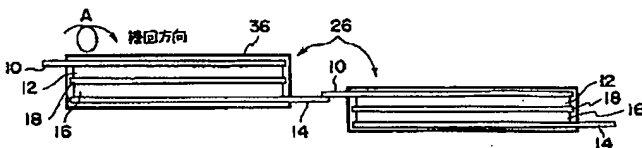
【図15】



【図8】



【図14】



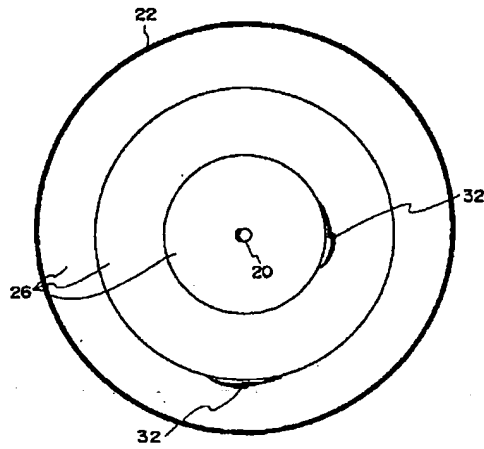
BEST AVAILABLE COPY

34/35

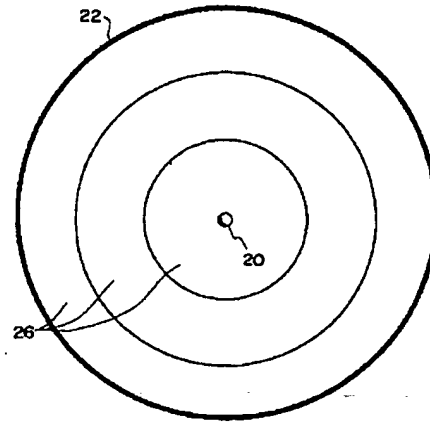
(10)

特開2000-30746

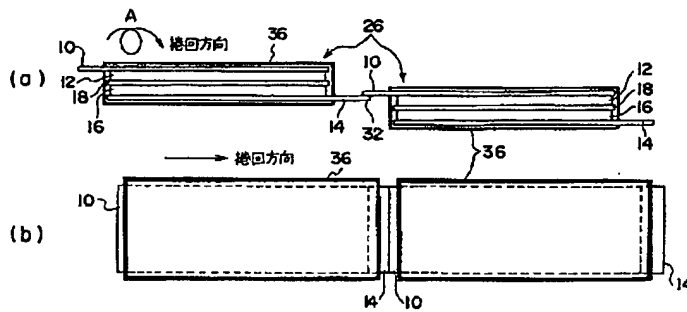
【図9】



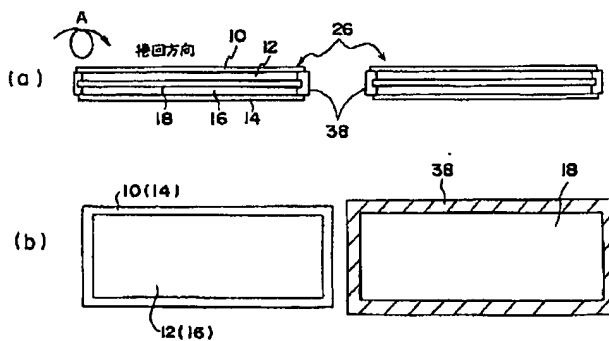
【図11】



【図10】



【図12】

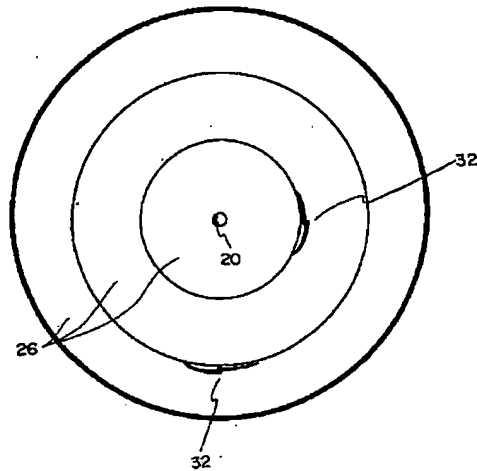


BEST AVAILABLE COPY

(11)

特開2000-30746

【図13】



フロントページの続き

F ターム(参考) SH022 AA09 AA18 AA20 BB03 CC19
CC21
SH028 AA01 AA05 BB05 CC05 CC08
CC12 CC19 HH10
SH029 AJ03 AJ12 AJ14 AK03 AL07
AM00 AM03 AM05 AM07 BJ02
BJ14 BJ17 CJ05 CJ07 CJ22
DJ04 DJ05 DJ07 HJ19 HJ20